

HEAT DISSIPATING SHEET AND HEAT DISSIPATING PLATE

Publication number: JP10237228
Publication date: 1998-09-08
Inventor: INADA TEIICHI
Applicant: HITACHI CHEMICAL CO LTD
Classification:
- **international:**
- **european:**
Application number: JP19970043067 19970227
Priority number(s): JP19970043067 19970227

Report a data error here

Abstract of JP10237228

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a heat dissipating sheet and a heat dissipating plate which are non-tacky even when thin, have low resistance to heat conduction, and are excellent in heat dissipation. **SOLUTION:** This heat dissipating sheet contains 100 pts.wt. rubber having a weight-average molecular weight of 200,000 to 2,000,000 and a Tg(glass transition temperature) of at most 20 deg.C, 20-100 pts.wt. silicone resin having a weight-average molecular weight of 500 of 100,000 and a Tg of at most 20 deg.C, and 0.1-5 pts.wt. coupling agent, and is obtained by blending these ingredients with an inorganic filler in an amount of 50-250 vol.pts. based on 100 vol.pts. resin. The heat dissipating plate is made by providing this sheet on a metal foil or plate.

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-237228

(43) 公開日 平成10年(1998) 9月8日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	F I
C 0 8 L 21/00		C 0 8 L 21/00
C 0 8 K 3/10		C 0 8 K 3/10
C 0 8 L 83/04		C 0 8 L 83/04
F 2 8 F 21/00		F 2 8 F 21/00
H 0 1 L 23/373		H 0 5 K 7/20
		Z
審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 5 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願平9-43067	(71) 出願人	000004455 日立化成工業株式会社 東京都新宿区西新宿2丁目1番1号
(22) 出願日	平成9年(1997) 2月27日	(72) 発明者	稲田 禎一 茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成 工業株式会社下館研究所内
		(74) 代理人	弁理士 若林 邦彦

(54) 【発明の名称】 放熱シート及び放熱板

(57) 【要約】

【課題】膜厚を薄くさせた場合でもタック性がなく、熱抵抗が小さく放熱性に優れた放熱シートや放熱板を得る。

【解決手段】 (1) 重量平均分子量が20万~200万で、Tg(ガラス転移温度)が20℃以下のゴム100重量部および(2) 重量平均分子量が500~10万でTgが20℃以下のシリコーン樹脂20重量部~100重量部、(3) カップリング剤0.1重量部~5重量部を含みかつ(4) 無機フィラーを、樹脂100体積部に対して50~250体積部配合して得られる放熱シート。この放熱シートを金属箔または金属板に設けた放熱板。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (1) 重量平均分子量が20万～200万で、T_g（ガラス転移温度）が20℃以下のゴム100重量部および(2) 重量平均分子量が500～10万でT_gが20℃以下のシリコン樹脂20重量部～100重量部、(3) カップリング剤0.1重量部～5重量部を含みかつ(4) 無機フィラーを、樹脂100体積部に対して50～250体積部配合してなる放熱シート。

【請求項2】 請求項1記載の放熱シートを金属箔または金属板に設けた放熱板。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電子機器等の発熱部材からの放熱や熱伝導に優れた放熱シート及び放熱板に関する。

【0002】

【従来の技術】近年、電子機器の発達に伴い、多層配線板及び半導体パッケージ用配線板に対する配線の高密度化、電子部品の搭載密度の向上の要求が著しく、また半導体素子の単位面積あたりの発熱量の増大が著しい。このため、電子装置、半導体パッケージからの熱放散性の向上が望まれている。そこで、放熱性を向上させる目的で銅やアルミニウム等の放熱板を設置することが行われている。電子装置と放熱板の間にこれらの接触性を向上させる目的で放熱シリコンゲルシート、熱伝導性粘接着材が使用されている。このようなものとして特開昭52-118300号公報及び米国特許第4071652号公報があり、エチレンプロピレン弾性体及びイソブチレン系弾性体の混合物に熱伝導フィラーを添加した粘着テープが提案されている。また、特開平6-88061号公報に熱伝導性電気絶縁テープがあり、アクリル系粘着剤100重量部に対して熱伝導粒子を20～400重量部添加している。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら従来の放熱シリコンゲルシート、熱伝導性粘接着材では無機フィラーの添加量を増大させた場合、弾性率が大きくなり、追従性、クッション性が低下するという問題があった。また、これらは膜厚が厚いため熱抵抗が大きいという問題点もある。さらに膜厚を薄くさせた場合、表面にタック性がありフィルム同士が張り付き作業性が悪化するという問題が生じる。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者は、これらの問題について鋭意検討の結果、これらの問題を解決する放熱シートを得ることができた。すなわち、本発明は、

(1) 重量平均分子量が20万～200万で、T_g（ガラス転移温度）が20℃以下のゴム100重量部および(2) 重量平均分子量が500～10万でT_gが20℃以下のシリコン樹脂20重量部～100重量部、

(3) カップリング剤0.1重量部～5重量部を含みかつ(4) 無機フィラーを、樹脂100体積部に対して50～250体積部配合してなる放熱シートである。また、本発明は、上記の放熱シートを金属箔または金属板に設けた放熱板である。

【0005】本発明の放熱シートは表面にしみ出たシリコン樹脂が表面の凹凸に追従するため、適度な流動性を有し、充填性、クッション性に優れ、さらに接触熱抵抗の低減を図ることができる。また、表面にしみ出たシリコン樹脂の重量平均分子量が500～10万であるため、表面にシリコン樹脂が析出した場合でもタック性が小さく、フィルム同士が張り付くことがなく、薄いフィルムを扱う場合でも作業しやすくなる。また、溶剤に溶解したワニスを塗工、乾燥するため、膜厚精度が良く、熱抵抗のばらつきが少なくなる。

【0006】

【発明の実施の形態】本発明で使用するシリコン樹脂は、分子量が500～10万のシリコンオイルが使用される。分子量が500未満の場合、塗工、乾燥工程において、シリコン成分が相分離し、過剰に表面にしみ出てきて、タック性が大きくなるので好ましくない。分子量が10万を超えた場合、シリコン成分の流動性が小さく、無機フィラーの充填性が低下するので好ましくない。このようなシリコンオイルとして、例えばジメチルシリコンオイルであるSH200（東レダウコーニングシリコン株式会社製商品名）がある。本発明で用いるシリコン樹脂の添加量は、20重量部～100重量部であるが、20重量部未満であると、無機フィラーの充填性、可とう性が少なくなるため好ましくない。また、100重量部を超えると、放熱シートの強度が小さくなるため好ましくない。

【0007】本発明で使用する無機フィラーとしては、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、アルミナ粉末、窒化アルミニウム、ほう酸アルミウイスカ、窒化ホウ素、結晶性シリカ、非晶性シリカ、炭化ケイ素などが挙げられる。特に、熱伝導性をよくするためには、アルミナ、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、結晶性シリカ、非晶性シリカ、炭化ケイ素が好ましい。これらの内、アルミナは、熱伝導性が良く、耐熱性、絶縁性が良好であり特に好適である。フィラーの形状としては、球形フィラーが好ましく、このようなものとして、AS-50、AS-40、AS-30（昭和電工株式会社製商品名）が挙げられる。

【0008】本発明で使用するゴムは、放熱シートとしての強度を付与するため、重量平均分子量が20万以上であることが必要である。また、重量平均分子量が、200万を超えると、溶解性に劣り、濃度を低くしないと溶解しにくくなるので、使用する溶剤の量が多くなり経

済的に好ましくない。本発明で使用するゴムは、取扱性とシリコーン樹脂との混合性からTg（ガラス転移温度）が20℃以下である必要がある。このようなゴムとしては、アクリロニトリールブタジエンゴムやアクリルゴムおよびこれらにカルボキシ基やエポキシ基等の官能基を付加したゴムが挙げられる。耐熱性に優れる点からアクリルゴムおよびこれにエポキシ基等の官能基を付加したゴムが好ましい。アクリルゴムは、HTR-600LB（重量平均分子量150万、Tg-42℃）、SG-790（重量平均分子量48万、Tg-38℃）、HTR-811（重量平均分子量42万、Tg-43℃）という商品名で帝国化学産業株式会社から市販されており、使用することが出来る。また、エポキシ基含有アクリルゴムはHTR-860P-3（重量平均分子量80万、Tg-7℃）という商品名で帝国化学産業株式会社から市販され、使用することが出来る。

【0009】本発明では、異種材料間の界面結合を向上させ、分散性、塗膜の均一性を向上させるために、カップリング剤を配合することが必要である。カップリング剤としては、（アルキルアセトアセタト）アルミニウムジイソプロピレート等のアルミニウム系カップリング剤、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリーノードデシルベンゼンシルホニルチタネート、イソプロピルトリス（ジオクチルピロホスフェート）チタネート、テトライソプロピルビス（ジオクチルフォスファイト）チタネート、テトラオクチルビス（ジトリデシルホスファイト）チタネート、テトラ（2、2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル）ビス（ジトリデシル）ホスファイトチタネート、ビス（ジオクチルピロホスフェート）オキシアセテートチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルジメタクリロイルイソステアロイルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリ（ジオクチルホスフェート）チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、イソプロピルトリ（N-アミノエチル-アミノエチル）チタネート等のチタネート系カップリング剤、シランカップリング剤が挙げられ、この中でシランカップリング剤が好ましい。シランカップリング剤としては、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-ウレイドプロピルトリエトキシシラン、N-β-アミノエチル-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。前記したシランカップリング剤は、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシランがNUC A-187、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシランがNUC A-189、γ-アミノプロピルトリエトキシシランがNUC A-1100、γ-ウレイドプロピルトリエトキシシランがNUC A-1160、N-β-アミノエチル-γ-アミノプロピル

トリメトキシシランがNUC A-1120という商品名で、いずれも日本ユニカー株式会社から市販され使用することが出来る。カップリング剤は、0.1重量部～5重量部を使用する。0.1重量部未満では、効果が少なく、5重量部を超えると耐熱性に劣るので好ましくない。

【0010】本発明の放熱シートの原料は、各成分を溶剤に溶解・分散してワニスとし、ベースフィルム上に塗布し、加熱して溶剤を除去してベースフィルムから剥がして使用する。得られる放熱シートの膜厚は、40～300μmが好ましい。ベースフィルムとしては、テフロンフィルム、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ルミラー（東レ、デュポン社製商品名）やビューレックス（帝人株式会社製商品名）等のポリエチレンテレフタレートフィルムもしくは離型処理したポリエチレンテレフタレートフィルムなどを使用することができる。

【0011】溶剤としてはシリコーン樹脂、ゴムともに溶解するトルエン等の芳香族炭化水素が使用できる。また、本発明では、銅箔やアルミニウム箔をベースフィルムとして、本発明の放熱シートのワニスを塗布することにより、放熱シート付き金属箔である放熱板、さらに、アルミニウム板、銅板、鋼板等の金属板の上にスクリーン印刷または塗布し加熱して放熱板とする。放熱シートを作製し、これを金属箔や金属板に貼り付け放熱板とすることもできる。これらに使用する金属箔は、マット面処理等の粗化処理を行っていることが好ましい。このような放熱シート付き金属箔または放熱シート付き金属板は、放熱シートと放熱金属板を一括して加工、積層作業ができるという利点がある。

【0012】

【実施例】

（実施例1）ゴムとして、エポキシ基含有アクリルゴム（重量平均分子量100万、Tg、-7℃、HTR-860P-3、帝国化学産業株式会社製商品名）100重量部、シリコーン樹脂として、ジメチルシリコーン（重量平均分子量1万、Tg、-50℃、SH200、東レダウコーニングシリコーン株式会社製商品名）30重量部、シランカップリング剤としてγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（NUC A-187、日本ユニカー株式会社製商品名）からなる組成物にトルエンを加え、さらに無機フィラーとして平均粒径5μmの球形アルミナフィラー（AS-50、昭和電工株式会社製商品名）を樹脂（ゴム、シリコーン樹脂とシランカップリング剤を合計したもの）100体積部に対して100体積部になるように加えた。これをビーズミルで混合し、さらにトルエンを加えて粘度を調整し、真空脱気した。得られたワニスを、厚さ70μmの離型処理ポリエチレンテレフタレートフィルム上に塗布し、110℃で15分間加熱乾燥して、膜厚が0.07mmの塗膜を形成し

これを離型処理ポリエチレンテレフタレートフィルムから剥離して放熱シートを作製した。

【0013】（実施例2）ゴムとしてエポキシ基含有アクリルゴム（重量平均分子量100万、 T_g 、 -7°C 、HTR-860P-3、帝国化学産業株式会社製商品名）のかわりにアクリルゴム（重量平均分子量150万、 T_g 、 42°C 、HTR-600LB、帝国化学産業株式会社製商品名）を用いたほかは実施例1と同様にして放熱シートを作製した。

【0014】（実施例3）厚さ $70\mu\text{m}$ の離型処理ポリエチレンテレフタレートフィルム上に塗布し膜厚が 0.07mm の塗膜を形成しこれを離型処理ポリエチレンテレフタレートフィルムから剥離して放熱シートを作製するかわりに、厚さ $70\mu\text{m}$ の銅箔の上に塗布し、 110°C で15分間加熱乾燥して膜厚が 0.07mm の塗膜が形成された放熱シート付き銅箔である放熱板を作製した。

【0015】（比較例1）シリコーンゴムとしてSE4440（フィラー入り放熱用シリコーンペースト、東レダウコーニングシリコーン株式会社製商品名）を用い、 120°C で1時間硬化させ、厚さ 2mm のシリコーンゴ

$$X = (T_1 - T_2) / W \quad \dots\dots\dots (\text{数}1)$$

【0019】熱伝導率：迅速熱伝導率計QTM-500（京都電子工業株式会社製商品名）を用いて測定した。充填性：ガラス布基材エポキシ樹脂両面銅張積層板（基材厚さ $200\mu\text{m}$ 、銅箔厚さ $18\mu\text{m}$ ）をもちい、積層板の両面に常法によりパターン幅 0.5mm でパターン間距離 0.5mm のパターンをエッチングにより形成し、このパターンの上に、それぞれ $100\text{mm} \times 100\text{mm}$ の放熱シート（膜厚 0.07mm ）を重ね、さらにその上に厚さ 2mm で $100\text{mm} \times 100\text{mm}$ のアルミニウム板とを重ね、温度 100°C 、圧力 1.96MPa で30分間加熱加圧して成形し、積層板を得た。この積

* ム製放熱シートを作製した。

【0016】（比較例2）比較例1と同様にして厚さ 0.07mm のシリコーンゴム製放熱シートを作製した。

【0017】実施例及び比較例で得られた放熱シートや放熱板を用いて、熱抵抗、充填性、タック性を下記のようにして測定し、その結果を表1に示した。

熱抵抗：放熱シート（膜厚 0.07mm ）を、厚さ $35\mu\text{m}$ 、 $10\text{mm} \times 14\text{mm}$ の銅箔と厚さ 2mm 、 $30\text{mm} \times 30\text{mm}$ のアルミニウム板との間に積層し、温度 100°C 、圧力 1.96MPa で30分間加熱加圧して試験片を得た。この試験片の銅はくにはトランジスタ（2SC2233）をはんだで固着し、アルミニウム板側が放熱ブロックと接するようにして放熱ブロックの上において、トランジスタに電流を通じた。そして、トランジスタの温度（ T_1 ）と、放熱ブロックの温度（ T_2 ）を測定し、測定値と印加電力（ W ）から、次の数1によって熱抵抗（ X ）を算出した。

【0018】

【数1】

※層板をダイヤモンドカッターで切断し、断面を光学顕微鏡で観察し、ガラス布基材エポキシ樹脂両銅張積層板のパターン、放熱シート、アルミニウム板間にボイドが発生していないものを良好と判定しボイドが発生しているものを不良と判定した。

タック性：放熱シート同士を温度 20°C 、圧力 1.96MPa で張り付けた後、 $50\text{mm}/\text{秒}$ の速さで剥離した際、放熱シートに亀裂が生じないものを良好、亀裂が生じるものを不良と判定した。

【0020】

【表1】

項目	単位	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2
熱伝導率	W/mK	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0
熱抵抗	$^{\circ}\text{C}/\text{W}$	0.3	0.3	0.3	8.0	0.3
充填性	—	良好	良好	良好	良好	不良
タック性		良好	良好	良好	良好	不良

【0021】

【発明の効果】本発明の放熱シートは、表面にしみ出たシリコーン樹脂が表面の凹凸の追従するため、適度な流動性を有し、充填性、クッション性に優れ、さらに接触熱抵抗の低減を図ることができる。また、表面にしみ出

たシリコーン樹脂の重量平均分子量が $500 \sim 10$ 万であるため、表面にシリコーンが析出した場合でもタック性が小さく、フィルム同士が張り付くことがないため、薄いフィルムを扱う場合でも作業しやすい。

(5)

特開平 1 0 - 2 3 7 2 2 8

フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁶

H 0 5 K 7/20

識別記号

F I

H O 1 L 23/36

M